

## 경수로용 고연소도 핵연료 큰결정립 $UO_2$ 소결체의 하나로 조사시험

**Irradiation Test of the High Burn-up Large Grain  $UO_2$  Pellets in HANARO Reactor**

김대호, 이찬복, 김선기, 김영민, 양용식,

정연호, 서철교, 임경환

한국원자력연구소

대전광역시 유성구 덕진동 150

### 요 약

경수로용 고연소도 핵연료에 적용하기 위해 개발된 큰결정립  $UO_2$  소결체가 2002년 7월부터 하나로에서 조사되고 있다. 큰결정립  $UO_2$  소결체는 연소도 70 MWD/kgU 이상까지 하나로에서 연소시킬 계획이다. 70 MWD/kgU 이상까지 연소하기 위해서는 대략 60개월의 연소기간이 필요하며 캡슐의 건전성 확보를 위하여 30개월 연소후 새로운 캡슐로 교체할 계획이다. 2003년 12월 31일 기준 18개월의 장전기간 중 총 유효 조사기간(FPD)은 320.6일(24MW)이며 이때의 상단 핵연료봉 3개의 평균연소도는 19.5 MWD/kgU이고 하단의 핵연료봉 3개의 평균 연소도는 21.8 MWD/kgU이다. 캡슐의 건전성 확인을 위해 장전 후 3회의 인출 육안검사를 실시한 결과 캡슐의 마모 흔적이 전혀 없이 부품별 아주 우수한 성능을 보였다.

### Abstract

The large grain  $UO_2$  pellet developed for the high burn-up PWR fuel is under irradiation in the HANARO since July of 2002. The large grain  $UO_2$  pellets will be irradiated up to the burn-up higher than 70 MWD/kgU. To irradiate the  $UO_2$  pellets up to the burn-up 70 MWD/kgU, it takes about 60 months and therefor to ensure the integrity of the irradiation capsule, the capsule will be replaced by the new capsule after 30 months. The burn-up of the fuel rods was 19.5 MWD/kgU for the upper three fuel rods and 21.8 MWD/kgU for the lower three fuel rods, as of the end of 2003 by which the effective irradiation time is 320.6 day at 24MW power HANARO. To confirm the integrity of in-pile capsule, the visual examination of the capsule has been three times, a showing excellent performance of the capsule with no sign of the wear.

## 1. 서 론

경수로용 고연소도 핵연료에 적용하기 위해 개발된 큰 결정립 신형  $UO_2$  소결체의 노내 성능 시험을 통한 검증에 대해 하나로 OR-4 조사공에서의 조사시험을 추진 중에 있다.[1] 시험연료봉은 무계장캡슐에 장입되어 하나로 OR-4 조사공에서 경수로 핵연료의 출력 및 온도 조건과 유사하거나 보수적인 조건에서 수행되고 있다. 조사후에는 핵분열 기체방출, 소결체의 안정성 및 고연소도에서의 결정립 세분화 및 핵분열기체 기포 생성, Rim effects 검사 등이 수행될 예정이다.

하나로 노내 캡슐에 장전될 시험봉의  $UO_2$  소결체는 고연소도용으로 개발되었으며 별도의 화합물 첨가제를 사용하지 않고  $1300^\circ C$ 에서 4시간 공기분위기에 열처리된  $U_3O_8$  단결정을 소결체 제조공정에 4 ~ 6% 첨가하여 제조한 큰결정립 소결체이다. 이때 성장되는 결정립의 크기는 12 ~ 20  $\mu m$ (기존 소결체 결정립 크기는 6 ~ 8  $\mu m$ )이다. 이 기술은 현재 한전 원자력연료주식회사에서 양산공정 실증시험 중에 있으며 현재 우수한 결과를 보이고 있다. 사용된 시험연료봉의 특성은 표 1.과 같이 3가지의 결정립크기를 갖는 시편을 사용하였다. 3가지의 시험 핵연료봉은 상단 및 하단 봉다발로 구성되어 총 6개의 시험연료봉이 배치되었으며, 35,000 MWd/MTU 연소후 캡슐을 인출하여 상단의 봉다발은 제거한 후 조사후시험을 통한 성능자료 생산에 이용되고, 하단의 봉다발은 하나의 초기 선출력 제어를 목적으로 설치되었던 하프늄 튜브를 제거한 후 새로운 캡슐에 장착하여 목표연소도인 70,000 MWd/MTU까지 연소하게 된다.

조사시험에 따른 시험연료봉 제조시 상용연료 제조조건을 만족하도록 상용수준의 품질관리를 통해 제작되었다.[2,3,4,5] 시험봉의 충전가스의 종류 및 압력을 조절하여 시험봉의 온도 조건을 경수로 핵연료의 실제 연소조건과 동일하도록 하였으며, 분석결과 하나로의 특성상 충전 기체로 100% Helium을 1기압 충전하는 방법을 사용하였다. 본 시험에 사용되는 무계장캡슐은 압력강하, 진동 및 내구성실험을 수행하여 캡슐의 건전성이 확인하였다. 실험으로부터 200 kPa의 압력강하를 유발하는 유량은 약 7.45 kg/s로 측정되었다. 진동실험 결과 진동주파수 영역은 약 13.0 - 32.3 Hz 범위였으며 측정된 RMS 변위는 11.6  $\mu m$  이하이고, 경수로용 신형소결체 무계장 캡슐의 최대 진동변위는 30.5  $\mu m$  이하의 매우 낮은 범위로 관찰되었다. 내구성 실험은 200 kPa 발생유량의 110%인 8.19 kg/s의 유량조건에서 내구성 실험은 103일 17시간 동안 수행되었다. 내구성실험결과 시험용 무계장캡슐에서는 인식할만한 마모는 없었으며 Guide Arm #2의 우측과 상단스프링에서 마모의 흔적이 발견되었으나 극히 미세하며 정량적인 마모량 계산이 곤란하였다. 따라서 하나로 조사시험용 경수로용 신형소결체 무계장캡슐은 압력강하, 냉각수 유량, 고유진동 및 마모에서 하나로 노내조사시험을 위한 시험제한치를 모두 만족하였다. 본 시험의 특징 중에 상용로와 유사한 연소거동을 목적으로 하나로 초기 선출력 제어를 위해 중성자 흡수체인 하프늄을 시험봉다발 외곽에 사용하였다. 하나의 축방향 선출력 분포에 따라 핵적계산에 의해 선출력을 제어할 수 있도록 상단은 0.3mm 두께, 하단은 0.6mm의 두께로 하프늄 튜브를 설계하였다. 하프늄 튜브를 시험봉 집합체 외곽에 장착한 가장 중요한 이유는 시험 핵연료봉이 연소시 200 ~ 500 W/cm의 선출력에서 연소되어 가능한 상용로 연소상황과 유사하도록 환경조건을 만들어주는데 목적이 있다.

큰결정립 신형  $UO_2$  소결체의 하나로 조사시험용 무계장캡슐은 Dupic 핵연료의 조사 시험을

위해 개발된 무계장캡슐의 설계물[6] 기본으로 하여, 신행 소결체의 조사 요건에 따른 설계개선을 그림 1과 같이 수행하였다. 큰결정립 신행 소결체는 70 MWd/kgU 이상의 연소도까지 고온 및 고출력에서 장기간 연소되기 때문에 시험 핵연료봉 및 캡슐의 건전성 유지 및 하나로 Outside Core(OR 출)의 안전성 확보에 최우선적인 관심을 두고 설계되었다. 또한 6 개의 시험봉을 일시에 조사하기 위해 그림 1과 같이 상하의 2층 구조로 하여 각각 시험연료봉이 3 개씩 배치되었다. 하나로에서의 총 연소기간은 하나로 운전 효율, 약 75 %를 고려하면 5년 정도 소요될 것으로 예상된다.[7]

본 논문에서는 하나로에서 조사시험 중인 큰결정립 신행  $UO_2$  소결체의 중간평가 및 분석을 수행하여 이어지는 조사시험 수행계획의 변경 및 보완에 활용될 예정이며, 사용 중인 무계장캡슐의 Visual Test를 통한 마모 등의 건전성 평가를 수행하였다.

표 1. 시험 핵연료 소결체 시료특성표

구 분	설 명	결정립 크기	수량(Pellet)
시험 연료봉 1	표준 상용소결체	8 $\mu$ m	상단/하단 각 5개
시험 연료봉 2	큰결정립 소결체	15 $\mu$ m	“
시험 연료봉 3	Annealed 소결체	23 $\mu$ m	“

구 분	검사기준	시험 연료봉 1	시험 연료봉 2	시험 연료봉 3
결정립 크기( $\mu$ m)	5 $\mu$ m 이상	8	15	23
U-235 농축도(wt%)	4.5 $\pm$ 0.05 wt%	4.498	4.466	4.461
우라늄 함량(wt%)	88 wt% 이상	88.148	88.128	88.132
O/U 비	2.0 $\pm$ 0.01	2.000	2.004	2.003
수분함량(ppm)	0.6 ppm 미만	0.13	0.11	0.12
등가보론 함량(ppm)	2.36 ppm 미만	1.28	1.25	1.17
재소결 밀도(%TD)	1.0 %TD 이하	0.692	0.328	0.061

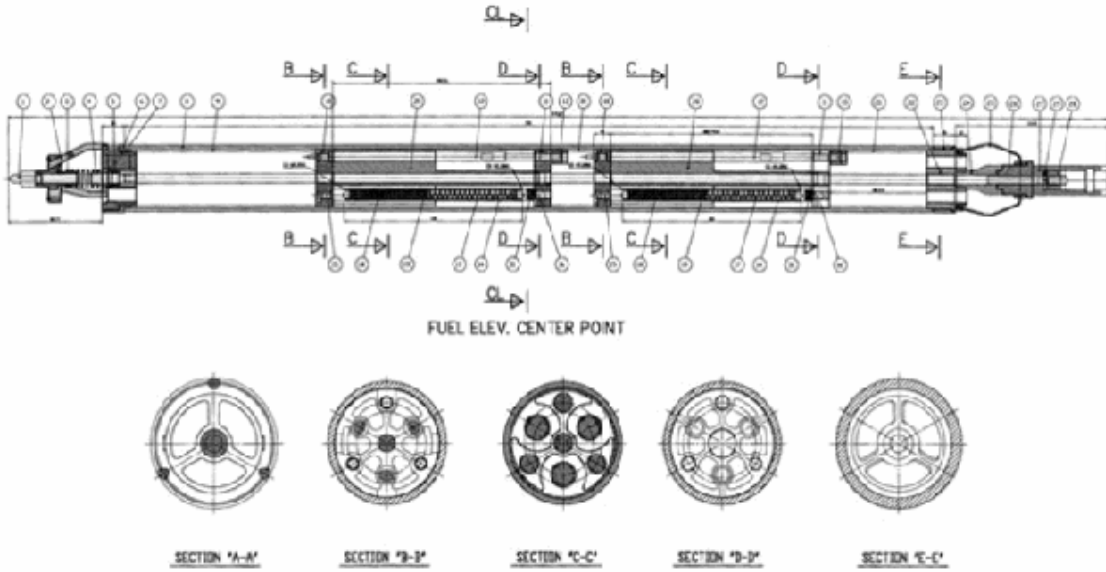


그림 1. 교연소도용 큰결정립  $UO_2$  소결체 노내시험용 켈셀 개략도

## 2. 하나로 조사시험

### 2.1 조사시험 개요

하나로의 정상 가동 조건에서 OR-4 조사시험공에서 2002년 7월 5일 조사시험을 시작하였다. 상세한 하나로 조사 조건은 다음과 같다.

- 조사공 : 하나로 OR-4 조사공 시험공
- 시험핵연료봉 선출력

MCNP 및 HANAFMS를 이용하여 핵연료봉 속에 장전된 큰결정립  $UO_2$  소결체 stack의 축방향 중심이 원자로심의 중심으로부터 27.125 cm 위에 위치할 경우의 선출력을 계산한 결과, 정상 상태 하에서  $UO_2$  소결체의 최대 선출력은 다음과 같이 계산되었다[3].

- 원자로 출력 : 24 MW 이후 하나로 운영관리에 따라 30 MW 운전 고려
- 제어봉 위치 : 450 mm
- 정지봉 위치 : 완전 인출
- 최대 선출력(Hot Spot) : 72.35 kW/m
- 냉각수 유량 : 7.447 kg/sec
- 냉각수 압력 : 0.4 MPa
- 목표 연소도 : 1 차 조사시험 : ~ 35 MWD/kgU  
2 차 조사시험 : ~ 70 MWD/kgU

## 2.2 조사시험 분석

고연소도용 큰결정립  $UO_2$  소결체는 2002년 7월5일부터 노심에서 연소시험을 시작하였다. 2002년 10월 25일, 2002년 12월 27일, 2003년 12월 31일 3회에 걸쳐 연소시험 결과를 평가하였으며, 이때의 고연소도용 큰결정립  $UO_2$  소결체에 대한 유효조사일수와 분석연소도 및 예비분석 연소도는 표 2와 같다.

표 2. 큰결정립  $UO_2$  소결체 하나로 조사현황

유효조사일수(24MW)	시험 핵연료봉 3개 평균 연소도(MWD/MTU)			
	하단 시험연료봉		상단 시험연료봉	
	VENTURE	예비분석	VENTURE	예비분석
68.14일	5,430	6,370	4,310	5,820
108.7일	8,445	10,200	6,887	9,590
320.6일	21,787	29,730	19,517	27,130

하나로의 원자로출력 변화와 제어봉의 위치에 의해 계획된 연소도에 영향을 미치게 된다. 초기 조사계획과는 달리 하나로의 운전계획의 변경 및 상황에 의해 목표연소도 보다는 작게 평가되고 있다. 그림 2.는 조사기간 동안 원자로 운전 에 따른 캡슐 내 상단 및 하단에 위치하고 있는 시험 연료봉 3개의 평균 선출력을 보여준다. 그림에서 보면 상단에 장전된 시험연료봉이 제어봉 위치에 영향을 많이 받아 원자로 운전 시작 때는 출력이 낮다가 원자로 운전이 계속됨에 따라 제어봉이 인출되면서 출력이 높아지는 것을 알 수 있다. 그림 3과 4는 캡슐의 상단 및 하단에 위치한 각 시험연료봉의 조사시간동안 선출력 변화를 보여준다.

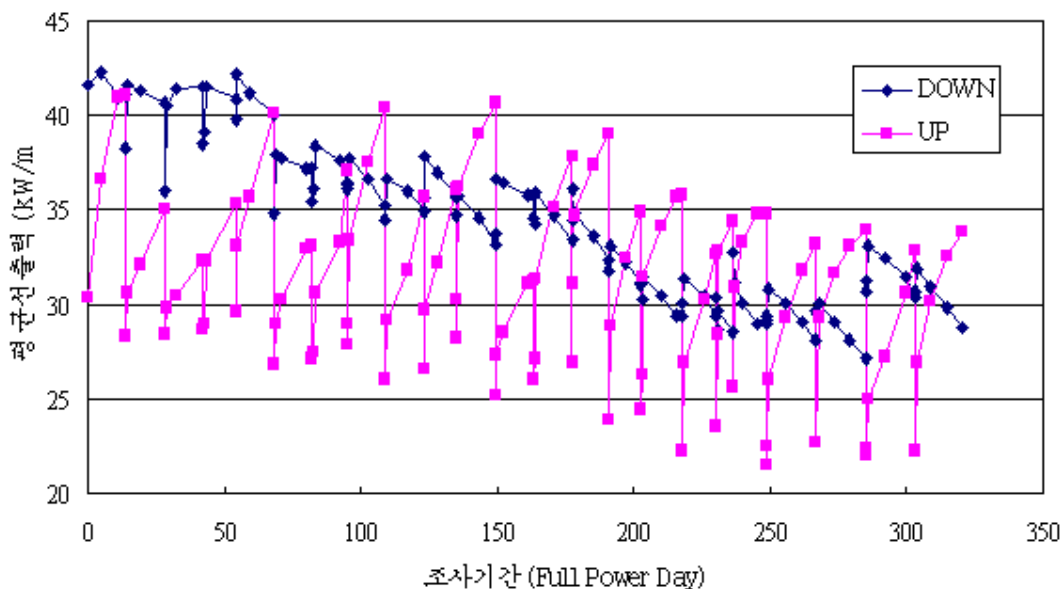


그림 2. 조사기간중 시험연료봉 3개의 평균 선출력

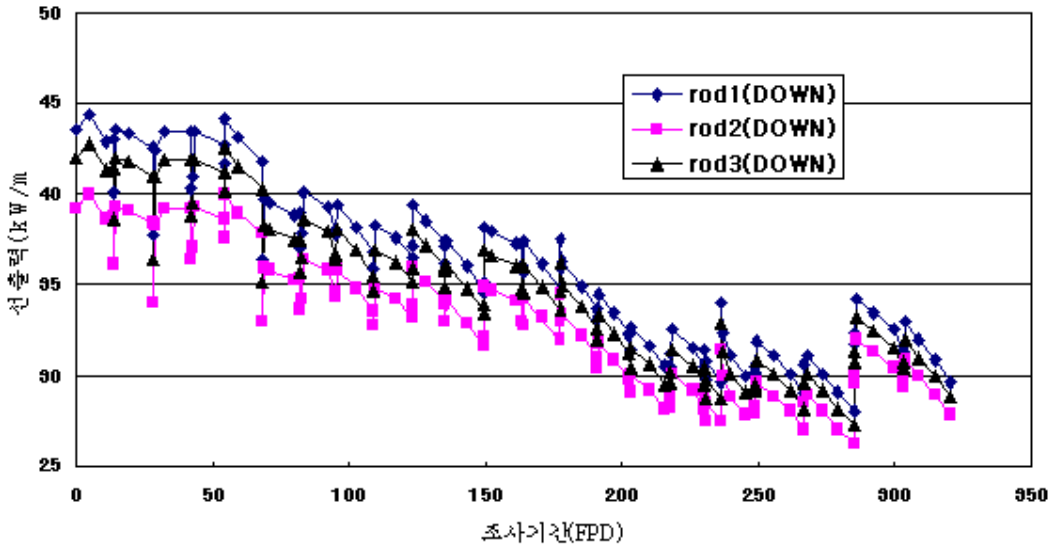


그림 3. 조사기간중 하단 시험연료봉(DOWN) 봉별 선출력

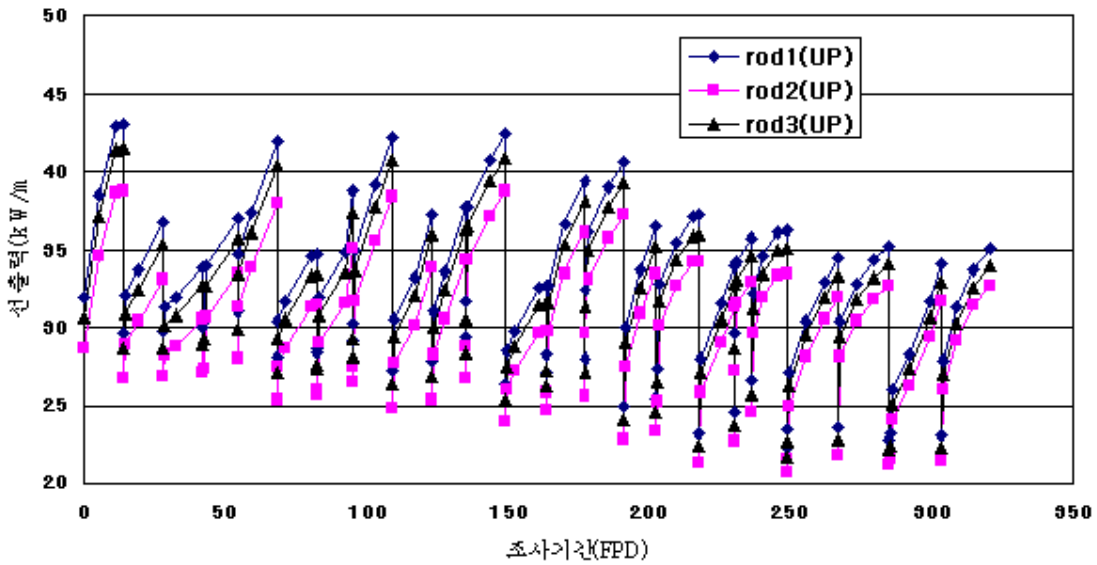


그림 4. 조사기간중 상단 시험연료봉(UP) 봉별 선출력

그림 3과 4에서 보는 것과 같이 시험연료봉은 200 ~ 500 W/cm 사이에서 연소되는 것을 알 수 있으며 상단시험연료봉의 선출력변화가 하단시험연료봉 보다 출력의 변화가 심하고 보다 낮게 연소되는 것을 알 수 있다. 이는 하나로의 출력조절에 따른 제어봉의 위치 변화에 민감하게 반응하는 것으로 판단된다. 시험연료봉의 연소도 평가에서 실제 원자로 운전자료인 장전기간의 원자로 출력과 제어봉 위치를 그림 5에서 보여주고 있다. 이를 근거로 HELIOS와 VENTURE 코드를 이용하여 상단 및 하단 시험연료봉의 평균 선출력과 제어봉 위치에서의 예측계산을 수행하였다.

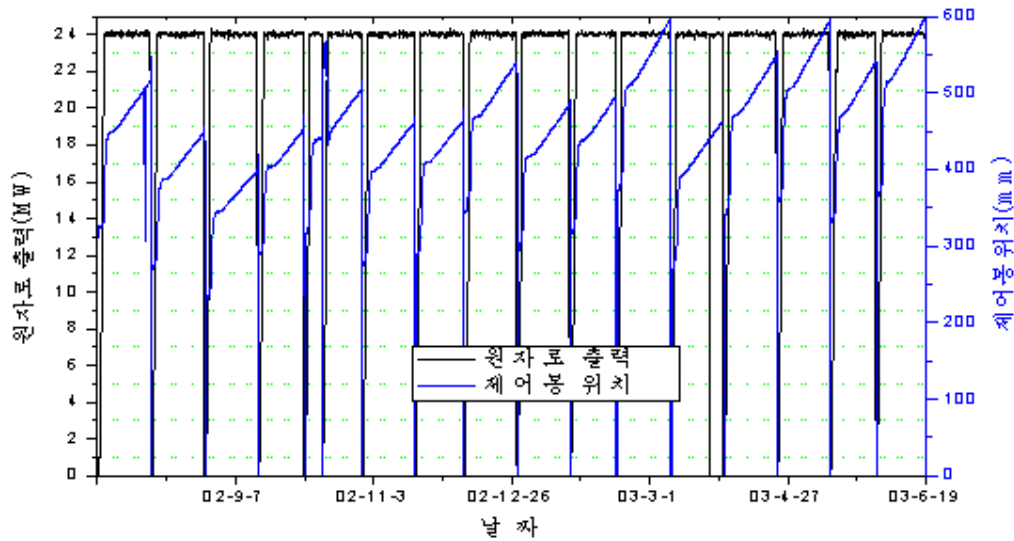


그림 5 시험연료봉 장전 기간동안의 원자로출력과 제어봉 위치

그림 6은 원자로의 실제 운전주기별 시험연료봉의 평균 선출력 예비계산과 HELIOS로 계산한 결과를 비교하였다. 그림에서 평균선출력이 예측계산보다 낮은 이유는 예측계산시 제어봉 위치를 450mm로 가정하여 평가하였으나 실제 원자로 운전자료(그림 5)를 보면 평균 제어봉 위치가 하나로의 운전상황에 따라 450mm 이하에서 많이 운전되었기 때문이다. 이에 제어봉 위치에 대한 영향을 알아보기 위하여 그림 7과 같이 각 주기별 제어봉 450mm에서의 선출력 만을 예측계산과 비교하였다. 결과를 보면 연소에 따른 선출력 절대값은 상단 시험연료봉에 대하여 VENTURE 계산이 예측 계산보다 약 20%정도 낮게 평가하고 있다. 각 주기별 노심 변경, 즉 하나로 핵연료의 재장전 및 재배치로 인하여 연소에 따른 선출력 변화를 일으키는 것으로 판단된다.

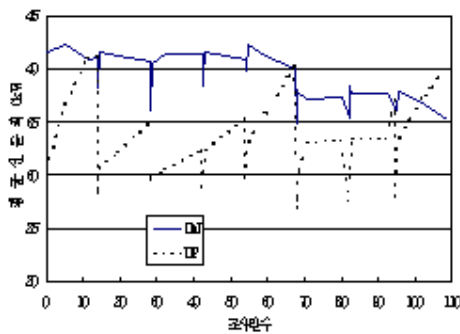


그림 6. 시험연료봉의 조사일수에 따른 평균 선출력

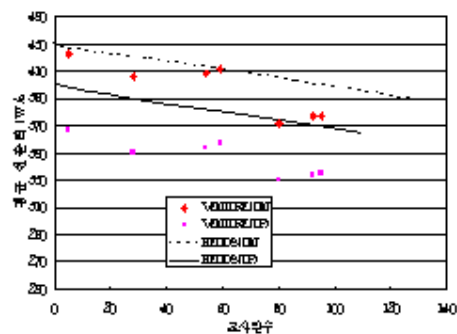


그림 7. 시험연료봉의 조사일수에 따른 평균선출력과 예측치의 비교

고연소도용 큰결정립  $UO_2$  소결체의 조사시험은 2 단계 조사시험이기 때문에 적절한 시점에서 핵연료 캡슐을 인출하여야 한다. 이를 위하여 그림 7과 같이 VENTURE로 연소 이력을 추적하여 적절한 시기에 인출하여야 한다.

### 3. 무계장캡슐의 건전성





#### 3.1 무계장캡슐의 구조

큰결정립 신형  $UO_2$  소결체의 하나로서 시험용 무계장캡슐은 70,000 MWd/MTU까지 연소시키기 위해서는 5년여의 장기간 조사가 필요하며 이를 위해서는 캡슐의 내구성이 확보가 필수적이다. 따라서, 단계적으로 대략 2.5년 정도의 내구성을 확보하고 노내 조사기간 중의 시험 핵연료봉의 냉각과 우회류 및 회전류에 의한 진동 등을 최소화하여 캡슐의 마모 최소화를 동시에 만족시키도록 기존의 무계장캡슐과는 다르게 설계 최적화를 통해 제작되었으며, 장기간의 연소되기 때문에 시험 핵연료봉 및 캡슐의 건전성 유지 및 하나로 OR 홀의 안전성 확보에 최우선적인 관심을 두고 제작되었다. 본 시험에 사용된 무계장캡슐의 특징 그림 1.에서 보는 것과 같이 시험연료봉 다발이 상하 2단구조로 되어 있으며, 외곽은 마모성이 좋은 알루미늄을 사용하였고 내부는 구조 건전성 차원에서 Stainless Steel이 사용되었다. 특히, 상단 고정용 스프링은 기존 3개의 편향용에서 수직형으로 6개를 설치하여 스프링의 파손시 지지건전성을 확보하는데 유리하도록 수정하였다. 본 캡슐은 103일 17시간의 내구성시험을 거쳐 건전성을 확보하였다. 실제 18개월간의 하나로 운전중 캡슐 3회에 걸쳐 캡슐을 인출하여 육안검사가 실시되었으며 사진을 통해 마모 및 건전성을 확인하였다.

#### 3.2 캡슐의 육안검사

큰결정립 신형  $UO_2$  소결체의 하나로서 시험용 무계장캡슐은 2002년 9월 17일, 2003년 1월 29일 및 5월 13일 3회에 걸쳐 Visual test가 수행 되었다. 육안검사시 중요한 point는 캡슐의 상단 고정체 스프링의 건전성 및 마모여부, 상단고정체의 알루미늄 커버의 마모여부, 하단고정체와 삼발이 (Guide Arm)가 접촉하는 삽입 홈의 마모여부, 외통의 건전성, 하단안내집합체(Bottom Guide Assembly) 및 중심축 Tip의 건전성을 확인해야 한다.

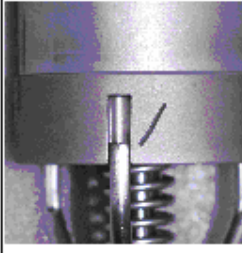


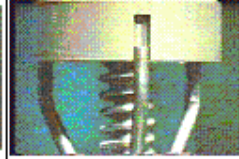
##### 3.2.1 상단 고정체 스프링 및 상단고정체의 알루미늄 커버

검사일	시험 전	시험 75일 후	시험 210일 후	시험 320일 후
사진				

위에서 보는 것과 같이 스프링의 고정부위의 이탈이나 변형이 없는 것으로 확인되었으며 스프링도 마모의 흔적을 찾을 수 없다. 또한 스프링의 변형에 의해 외측의 유격이 유지하는 것으로 보아 스프링력이 유지됨을 알 수 있다. 상단고정체의 알루미늄 커버 또한 물때가 발생한 것을 확인할 수 있으나 마모는 없었다.

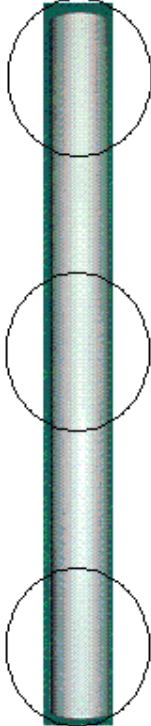
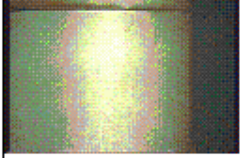
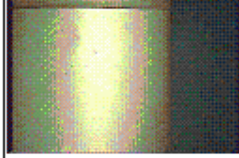
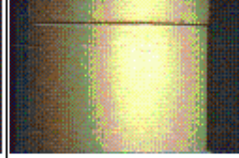
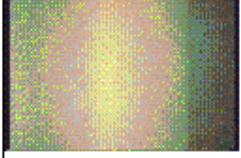
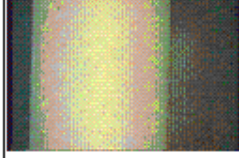
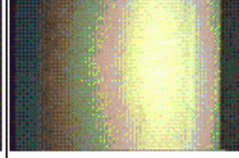
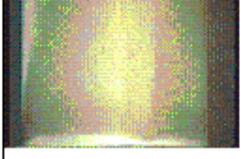

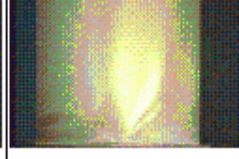


3.2.2 하단고정체와 삼발이(Guide Arm)

검사일	시험 전	시험 75일 후	시험 210일 후	시험 320일 후
사진				





하단고정체는 삼발이의 손상에 의해 OR 조사공 내벽면과 접촉이 가능한 부위로 마모여부는 중요한 관찰부위이다. 사진에서 보는 것과 같이 빠른 유속에 의해 물때가 붙은 것 이외에는 마모의 흔적은 없다. 또 중요한 부위가 삼발이 다리가 삽입되는 홈이다. 삼발이의 손상 또는 변형이 일어날 경우 홈 부위가 손상을 받게 되고 캡슐의 중심축이 흔들리는 중대한 사고의 원인이 될 수 있다. 육안검사결과 삼발이의 변형이 전혀 없는 깨끗한 상태이며 홈 역시 제조상태를 그대로 유지하고 있는 것으로 확인 되었다. 홈 안쪽의 스크래치가 있는 것은 장탈착에 의한 것으로 판단된다.

3.2.3 몸통

검사일	시험 전	시험 75일 후	시험 210일 후	시험 320일 후
사진				
				
				

몸통의 경우 재질이 알루미늄으로 되어 있어 열원에 약하고 이물질이 잘 달라붙는 것이 특징이다. 사진에서와 같이 관로를 시작하는 하단부위에 물때로 인한 변색이 있으나 전전성에는 문제가 없다. 중간부위와 상단부위에서는 하단부위 만큼의 심한 물때가 보이지 않는다.

### 3.2.4 중심축 Tip

검사일	시험 전	시험 75일 후	시험 210일 후	시험 320일 후
사진				

중심축 Tip은 캡슐이 하나로 하단의 스파이더 컵에 장착되는 부위로 제조 시 8 mm 봉에 용접되어 제작된다. 따라서 전체 캡슐이 지지되는 부위로 손상시 캡슐의 이탈뿐만 아니라 이로 인한 하나로의 손상도 유념해야하는 부위이다. 육안검사 결과 마모나 변형은 없었으며 삼발이 몸통 부위와 정확하게 붙어 있는 것으로 보아 건전성에 문제가 없는 것으로 판단되며 하단 스프링력 또한 유지되는 것으로 판단된다.

### 3. 결 론

경수로용 고연소도 핵연료에 적용하기 위해 개발된 큰결정립  $UO_2$  소결체의 하나로 노내 조사시험이 수행 중에 있다. 시험용 큰결정립  $UO_2$  소결체는 연소도 70 MWd/kgU 이상까지 하나로에서 연소시킬 계획이다. 70 MWd/kgU 이상까지 연소하기 위해서는 대략 60개월의 연소기간이 필요하며 캡슐의 건전성 확보를 위하여 30개월 연소후 새로운 캡슐로 교체할 계획이다. 2003년 12월 31일 기준 18개월의 장전기간 중 총 유효 조사기간(FPD)은 320.6일(24MW)이며 이때의 상단 핵연료봉 3개의 평균연소도는 19,500 MWd/MTU이고 하단의 핵연료봉 3개의 평균 연소도는 21,800 MWd/MTU이다. 시험연료봉은 200 ~ 500 W/cm 사이에서 연소되는 것을 알 수 있으며 상단시험연료봉의 선출력변화가 하단시험연료봉 보다 출력의 변화가 심하고 보다 낮게 연소되는 것을 알 수 있다. 평균선출력이 예측계산보다 낮은 이유는 예측계산에서 제어봉 위치를 450mm로 가정하여 평가하였으나 평균 제어봉 위치가 하나로에 따라 450mm 이하에서 많이 운전되었기 때문이다. 고연소도용 큰결정립  $UO_2$  소결체의 조사시험은 2 단계 조사시험이기 때문에 연소이력 추적을 통하여 적절한 시점에서 핵연료 캡슐을 인출하여야 한다. 큰결정립 신형  $UO_2$  소결체의 하나로 시험용 무계장캡슐은 2002년 9월 17일, 2003년 1월 29일 및 5월 13일 3회에 걸쳐 육안검사가 수행되었다. 육안검사에서 중요한 관점은 캡슐의 상단 고정체 스프링의 건전성 및 마모여부, 상단 고정체의 알루미늄 커버의 마모여부, 하단고정체와 삼발이(Guide Arm)가 접촉하는 삽입 홈의 마모여부, 외통의 건전성, 하단안내집합체(Bottom Guide Assembly) 및 중심축 Tip의 건전성을 확인한 결과 캡슐의 마모 흔적이 없이 각 부품별로 아주 우수한 건전성을 보이고 있다.

#### 4. 후기

본 연구는 과학기술부가 주관하는 원자력연구개발 중장기계획사업의 지원으로 수행되었다. 본 연구에 도움을 주신 하나로운영기술부에 감사드립니다.

#### 5. 참고문헌

- [1] 김대호 외 “고연소도 신형  $UO_2$  소결체의 하나로 캡슐 조사시험을 위한 시험봉 설계,” 2000 추계원자력학회, 2001. 4.
- [2] 이찬복 외 “경수로 핵연료용 큰결정립  $UO_2$  소결체 조사시험, HANARO Workshop 2000, 2000. 12.
- [3] 김대호 외 “경수로용 고연소도 핵연료 큰결정립  $UO_2$  소결체의 하나로 조사시험용 무계장 캡슐의 설계최적화” 2001 추계원자력학회, 2001.10.
- [4] 김대호 외, “경수로용 신형소결체 조사시험용 무계장 캡슐 설계 및 제작,” KAERI/TR-2117/2002, 2002. 4.
- [5] 이찬복 외, “경수로용  $UO_2$  신형소결체 조사 시험 계획서,” KAERI/TR-2144/2002, 2002. 4.
- [6] 송기찬 외, “DUPIC 핵연료 조사 시험계획서,” KAERI/TR-1545/2000, 2000. 4.
- [7] 서철교, “고연소도 신형  $UO_2$  소결체의 조사 시험을 위한 예비 핵특성 분석”, HAN-RR-CR-900-00-082, KAERI, 2000.11.